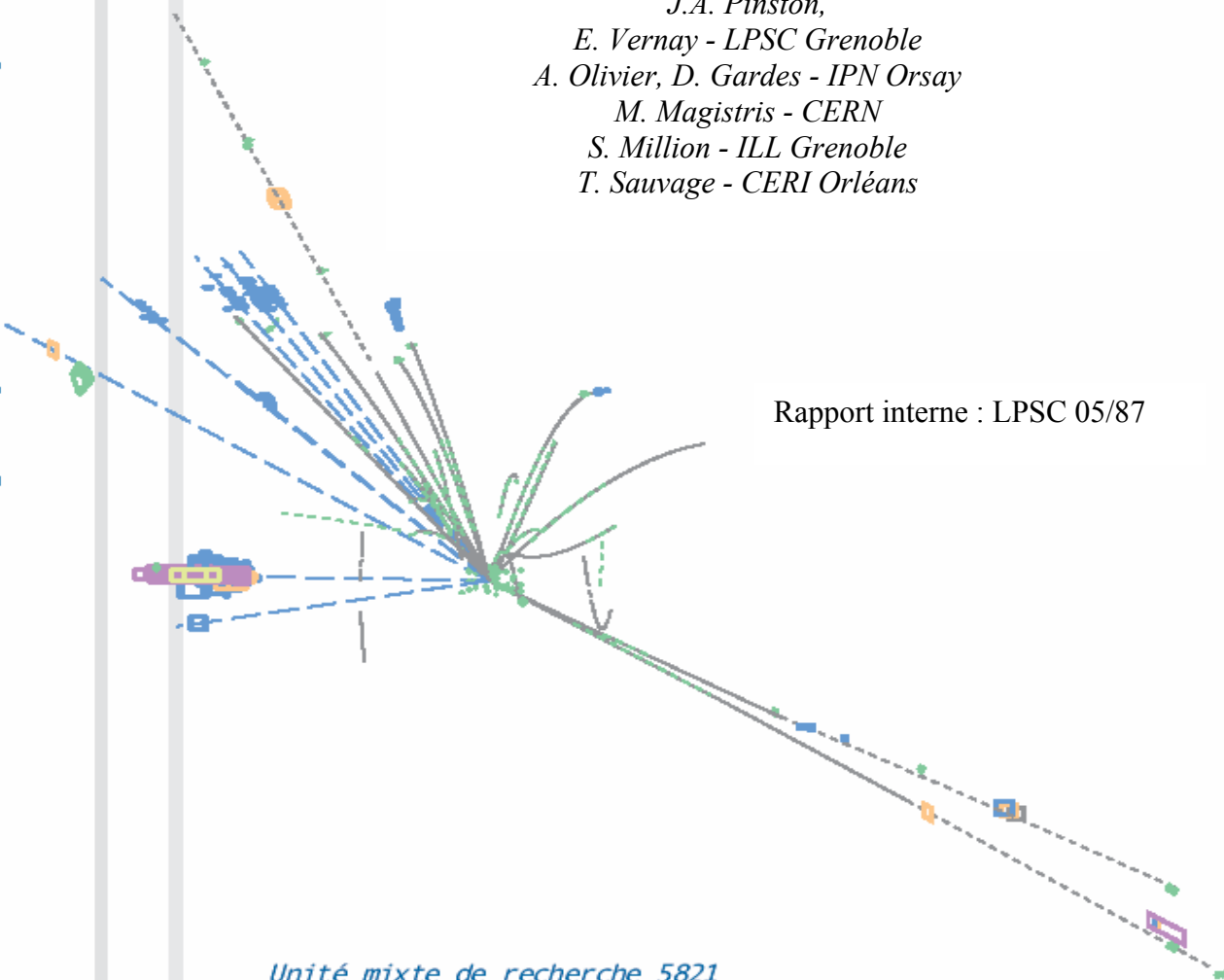


IPHI

Irradiations de l'arrêt faisceau en Nickel par des protons de 3 MeV

*D. Bondoux, R. Brissot, M. Fruneau, D. Marchand,
J.A. Pinston,
E. Vernay - LPSC Grenoble
A. Olivier, D. Gardes - IPN Orsay
M. Magstris - CERN
S. Million - ILL Grenoble
T. Sauvage - CERI Orléans*

Rapport interne : LPSC 05/87



Sommaire

I.	Introduction	5
II.	Rappels	7
III.	Le dispositif expérimental	8
	A. Tandem de l'IPN d'Orsay	8
	1. L'irradiation	8
	2. Détection	8
	3. L'étalonnage	9
	4. Traitement	9
	B. Van de Graaff du CERI d'Orléans	9
	1. L'irradiation	9
	2. Détection	9
	3. Etalonnage	9
	4. Traitement	9
	C. Le laboratoire de basse activité au LP	9
IV.	Les irradiations	10
V.	Le Nickel à 3 MeV	10
	A. Réactions sur le nickel pur à 3 MeV	10
	B. Les impuretés du Nickel	15
VI.	Analyses par activations neutrons	18
VII.	Le choix du Nickel	19
VIII.	Les débits de dose à la fin de la période d'essais	19
IX.	Activités et débits de dose en fonctionnement continu	22
X.	Nickel à 3 MeV et Cuivre à 3 et 5 MeV	22
	A. Nickel à 5 MeV	22
	B. Cuivre à 3 et 5 MeV	22
XI.	Production de neutrons	24
XII.	Conclusions	24
XIII.	Références	24

IPHI

Irradiations de l'arrêt faisceau en Nickel par des protons de 3 MeV

*D. Bondoux, R. Brissot, M. Fruneau, D. Marchand, J.A. Pinston, E. Vernay - LPSC Grenoble
A. Olivier, D. Gardes - IPN Orsay
M. Magistris - CERN
S. Million - ILL Grenoble
T. Sauvage - CERI Orléans*

I. Introduction

La qualification de IPHI impose l'arrêt du faisceau de 100 mA protons à 3 MeV pendant 6 mois aux heures ouvrables du laboratoire. La forme générale de l'arrêt faisceau (Fig 1) est un cône creux (diamètre 150 mm, hauteur 1500 mm) précédé d'une partie cylindrique (longueur 400 mm) refroidi à l'extérieur par de l'eau pour évacuer les 300 kW. Le matériau destiné à recevoir directement le faisceau doit être choisi d'une part en fonction de ses qualités mécaniques et thermiques, d'autre part en fonction de l'activation résiduelle induite : activité, gammas produits et période des radioéléments produits durant la phase de qualification et au bout de 6 mois de fonctionnement. Cela détermine les conditions d'accès à la casemate ainsi que les possibilités d'intervention sur l'arrêt faisceau lui-même. Les impuretés présentes peuvent dégrader très sensiblement les résultats obtenus pour un matériau pur.

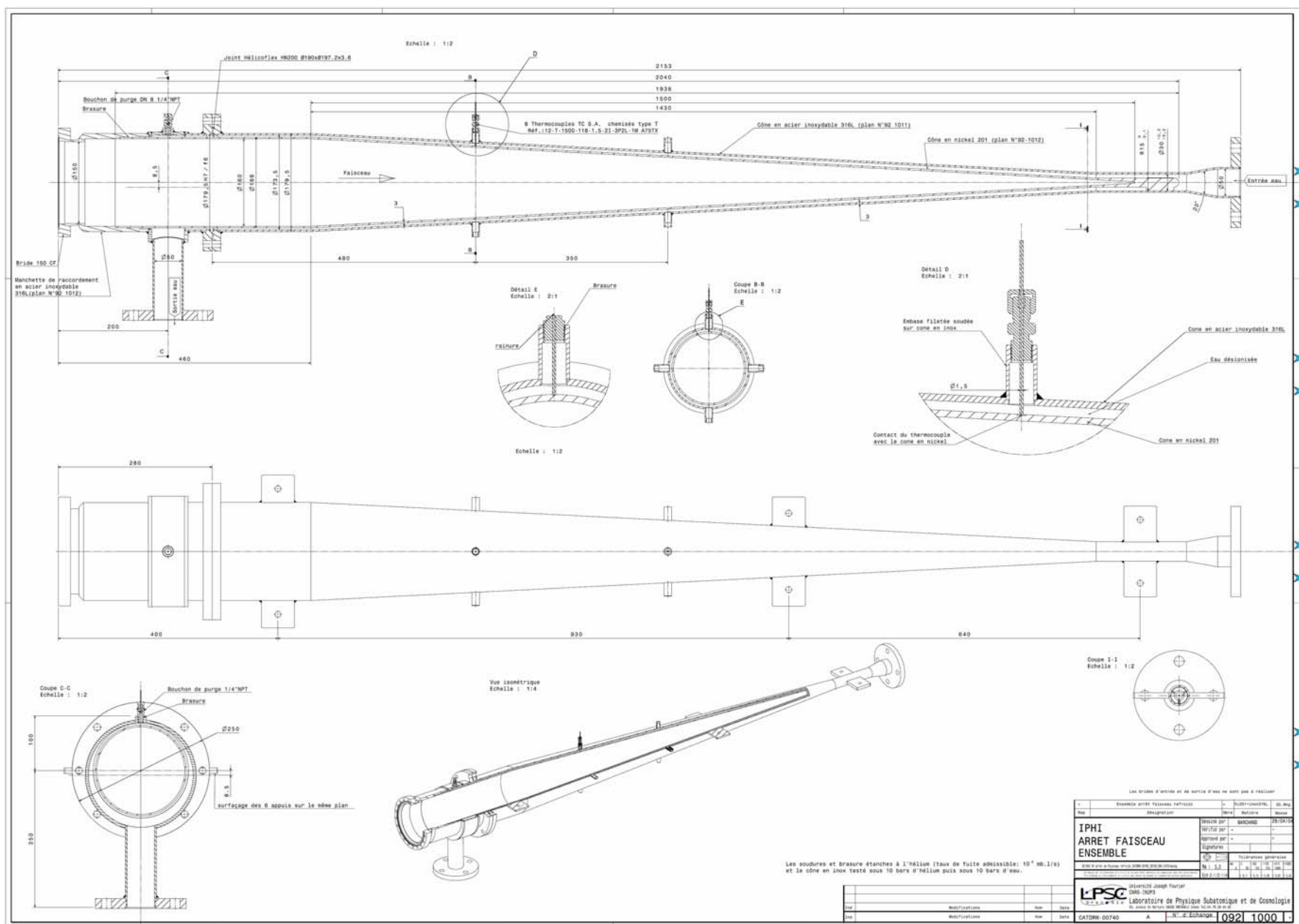


Figure 1 : Arrêt de faisceau conception mécanique.

Le carbone, intéressant du point de vue de la radioactivité n'a pas été retenu pour des raisons de réalisation mécanique, de même pour les matériaux lourds comme le Tantale. Le Cuivre, envisagé au départ, produit une activité importante en ^{65}Zn [Réf 1]. Finalement, nous avons choisi le Nickel déjà retenu pour l'arrêt de faisceau à 5 MeV protons de LEDA, [Réf 2]. Le Nickel déposé sur du Cuivre, solution intéressante pour le coût de la matière a été étudié mais la présence d'impuretés et les craintes d'un manque d'adhérence nous ont conduit à rejeter cette solution.

Pour le Nickel (et pour le Cuivre) les données expérimentales manquent à 3 MeV dans une zone d'énergie près des seuils de réaction. Daniel Gardès a proposé que des échantillons de Nickel soient irradiés au tandem d'Orsay. Ces expériences poursuivies au Van de Graaff d'Orléans ont permis de disposer de données plus fiables pour le Nickel pur, de calculer les activités pour l'arrêt de faisceau et d'estimer les débits de dose correspondants. Les activités dues aux impuretés de plusieurs qualités de Nickel ont aussi été étudiées, ce qui nous a permis de retenir et d'acheter la matière première pour l'arrêt faisceau.

II. Rappels

Pour le Nickel et le Cuivre, les réactions les plus attendues avec des protons de 3 MeV sont des réactions p,n. Matteo Magistris a envisagé des réactions p, α pour le Nickel. Les réactions p, gamma sont également envisageables.

Pour toutes ces réactions, il convient de regarder attentivement celles qui produisent des éléments à période longue qui seraient très pénalisants à terme alors que les périodes de quelques heures demandent seulement de différer une éventuelle intervention d'une journée. On peut calculer l'activité pour une intensité et au bout d'un temps d'irradiation donné et son évolution au cours de la décroissance.

En supposant l'intensité constante pendant l'irradiation.

$$\text{Act}_i(t) = Y_i \cdot N_p \cdot A \cdot (1 - \exp(-0.693 \cdot t / T_{1/2}))$$

- Act_i est l'activité de l'isotope produit en Bq à la fin de l'irradiation
- Y_i est le rendement (yield) ou taux de production : probabilité de réaction par proton incident en cible épaisse.
- N_p est le nombre de protons incidents par seconde
- A est l'abondance isotopique
- $T_{1/2}$ est la demi-vie de l'isotope.

Au bout d'un temps de décroissance t_{dec} , l'activité est :

$$\text{Act}_i(t_{\text{dec}}) = \text{Act}_i(t) \cdot \exp(-0.693 \cdot t_{\text{dec}} / T_{1/2})$$

A partir de ces données, on peut calculer l'évolution du débit de dose connaissant les énergies et les intensités absolues des gammas produits.

Le rendement peut être calculé en intégrant les sections efficaces sur tout le parcours des protons à depuis l'énergie maximum jusqu'à l'arrêt. Pour le Nickel, le parcours des protons de 3 MeV est 30 μm , compte tenu de l'inclinaison du cône, les protons sont arrêtés dans une couche de 1,5 μm . Le peu de données dans des domaines d'énergie au voisinage des seuils de réaction permet tout au plus d'avoir une estimation. Expérimentalement, une valeur directe est obtenue en irradiant le matériau naturel et en relevant les spectres gamma en fonction du

temps après irradiation. On peut alors remonter à l'activité en fin d'irradiation pour chacune des réactions connaissant les intensités des raies et les périodes. Cependant, un même produit de réaction peut provenir de plusieurs types de réaction sur des isotopes différents de Nickel, voire sur des impuretés.

Le tableau 1 donne les réactions possibles avec des protons de 3 MeV sur du Nickel et du Cuivre naturels. L'énergie disponible pour la réaction a été calculée à partir des défauts de masse. On a mentionné les isotopes détectés.

Elément	Abondance isotope (%)	Réaction p,	Produit	Energie Disponible à 3 MeV (keV)	T _{1/2}	Gammas principaux (keV)	Intensités raie(s) %	Gamma vu
⁵⁸ Ni	68	alpha	⁵⁵ Co	1663	17,5 h	1408	17	
⁶⁰ Ni	26	alpha	⁵⁷ Co	2736	217 j	122	82	<i>oui</i>
⁶⁰ Ni	26	gamma	⁶¹ Cu		3,4 h	656/908	11/1,1	<i>oui</i>
⁶¹ Ni	1,13	alpha	⁵⁸ Co	3489	71 j	811	95	<i>oui</i>
⁶¹ Ni	1,1	n	⁶¹ Cu	-19	3,4 h	656/908	11/1,1	<i>oui</i>
⁶² Ni	3,59	alpha	⁵⁹ Co	3345	stable			
⁶⁴ Ni	0,91	alpha	⁶¹ Co	3663	1,6 h	908	3,6	
⁶⁴ Ni	0,91	n	⁶⁴ Cu	543	12,7 h	1345	0.47	<i>oui</i>
⁶³ Cu	69,09	alpha	⁶⁰ Ni	6755	stable			
⁶³ Cu	69,09	n	⁶³ Zn	-1149	38,4 m	669,6/962	8/6,5	<i>oui</i>
⁶³ Cu	69,09	gamma	⁶⁴ Zn		stable			
⁶⁵ Cu	30,8	n	⁶⁵ Zn	250	243 j	1115	50	<i>oui</i>

Tableau 1 : Réactions possibles avec des protons de 3 MeV sur Ni et Cu naturels.

III. Le dispositif expérimental

A – Tandem de l'IPN d'Orsay

1. L'irradiation

Les échantillons carrés (50 mm * 50 mm) sont disposés au fond d'une cage de Faraday avec anneau de garde polarisé à – 300 V dans une ligne de faisceau du tandem d'Orsay. Les irradiations ont duré quelques heures avec des intensités d'une fraction de microampère. Le courant du faisceau étant enregistré en continu et intégré sur des intervalles de temps réguliers.

2. Détection

Une chaîne de spectrométrie gamma (détecteur Ge refroidi à l'azote liquide, préampli, ampli et acquisition OASIS) a été prêtée par Orsay pour l'acquisition hors ligne.

Après irradiation, les échantillons ont pu être placés directement contre la fenêtre du détecteur (sauf quand l'activité trop élevée nécessitait un éloignement de la source).

3. L'étalonnage

La source d'Europium 152 présente des raies dans toute l'étendue du spectre et permet un étalonnage en énergie et une mesure de l'efficacité relative du détecteur en fonction de l'énergie. L'activité assez élevée ne permet pas des mesures au contact. Par ailleurs, la bonne connaissance des raies de ^{61}Cu et ^{64}Cu permet de vérifier l'étalonnage en énergie.

La source de ^{60}Co (20 kBq) peut être mise en contact avec la fenêtre du détecteur. La géométrie est sensiblement identique à celle des échantillons, angle solide voisin de 2π ; ce qui permet une mesure directe de l'efficacité de la détection.

4. Traitement

Après acquisition, les spectres enregistrés avec le logiciel d'acquisition OASIS de l'IPN d'Orsay ont été traités avec le logiciel ORIGIN.

B – Van de Graaff du CERI d'Orléans

1. L'irradiation

Trois échantillons de Nickel ont été irradiés au Van de Graaff d'Orléans. Ce sont cette fois des disques de diamètre 30 mm disposés au fond d'une cage de Faraday munie d'un repousseur d'électrons. Les irradiations de 1.4 microampères en 3 heures environ ont été faites à charge égale, 0.0144 Cb dans de bonnes conditions de stabilité.

2. Détection

Trois chaînes de spectrométrie semblables ont permis de relever en parallèle les spectres des trois échantillons irradiés.

3. Etalonnage

Les trois chaînes étaient déjà étalonnées en énergie. L'efficacité relative en fonction de l'énergie a été calculée au moyen d'une source de ^{152}Eu . Pour l'efficacité absolue, les spectres d'une source de ^{56}Co ont été relevés, puis cette source a été mesurée au LBA du LPSC.

4. Traitement

Les trois chaînes de spectroscopie délivrent directement les aires des pics. Les spectres ont également été traités avec le logiciel ORIGIN.

C - Le Laboratoire de Basse Activité au LP

Le LBA (Laboratoire de Basse Activité) du LPSC [Réf 3] est un laboratoire de spectroscopie gamma dédié à la mesure des très faibles activités. Il bénéficie d'un agrément ministériel.

Les mesures par un détecteur Germanium haute pureté sont faites dans un blindage de plomb archéologique. Un détecteur de rayons cosmiques en anticoincidence et la purification en radon de l'air du local par des filtres à charbon actif permettent de réduire le bruit de fond jusqu'à 0,05 coup par seconde, intégré de 0 à 3MeV. La sensibilité obtenue est de 1 mBq par échantillon. Le système d'acquisition tient compte de la géométrie de la source et calcule les activités à l'arrêt de l'irradiation.

IV. Les irradiations

Avril 2004

Cuivre CuCl à 3 MeV

Mai 2004

Ni Goodfellow 99.98 % à 3 et 5 MeV (fourni par J.P. Richaud).

Carbone à 3 MeV.

Cuivre à 5 MeV.

Mesure des débits de dose près de la cible lors des irradiations par Matteo Magistris.

Juillet 2004

Nickel 99 et 99.98 % à 3 MeV (achetés à Goodfellow).

Cuivre CuCl avec Nickelage électrolytique à 3 MeV.

La chaîne de spectrométrie ne fonctionne pas et les échantillons sont analysés quelques jours plus tard au LBA du LPSC.

Octobre

Nickel de variétés industrielles (^{201}Ni), plaques de 2 mm, 99.7 % provenant de ThyssenKrupp, achetés chez l'importateur Heptal, mais de coulées différentes, (dénommés à tort Euramet A et B).

Décembre (à Orléans)

Trois échantillons de Nickel industriel, 99,7 %, achetés chez Heptal, prélevés sur des cylindres de 190, 111 et 44 mm, provenant de trois métallurgistes différents, respectivement Carpenter, Huntington et ThyssenKrupp. L'analyse des trois échantillons a conditionné l'achat des cylindres qui vont servir à la réalisation de l'arrêt de faisceau.

V. Le Nickel à 3 MeV

A - Réactions sur le Nickel pur à 3 MeV

La figure 2 montre les spectres du Nickel immédiatement après irradiation (en noir) puis après 18 heures (en rouge, multiplié par 10). On a noté quelques raies du ^{61}Cu et la raie à 1345 keV de ^{64}Cu qui décroît moins vite. La raie à 793 keV correspond à la somme des énergies du ^{61}Cu à 283 keV et du 511 keV.

L'activité sur la raie à 511 keV provient (désintégration β) de toutes les désintégrations avec des facteurs liés aux différents modes de désintégration.

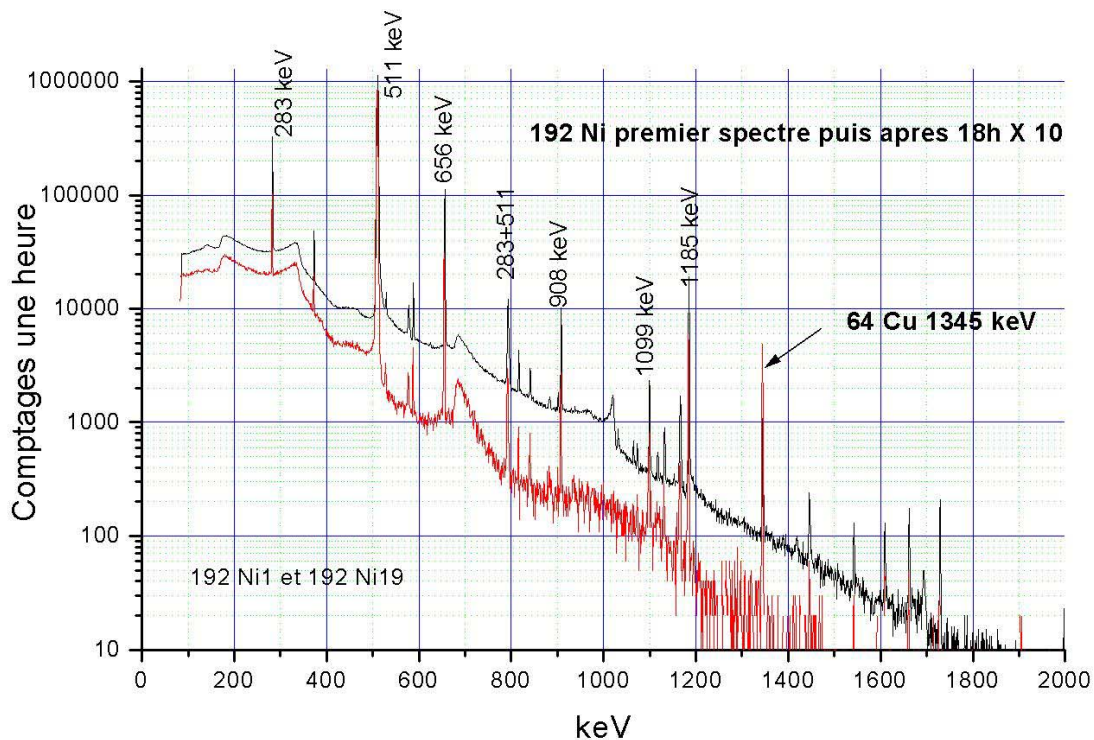


Figure 2 : Spectres du Nickel 192 relevés après irradiation puis après 18 heures de décroissance (échelle X 10)

Les résultats sont donnés dans les tableaux 2 à 4 pour les échantillons de Nickel cités plus haut. Cependant la détection sur place, immédiatement après l'irradiation n'a pu être faite en juillet. Si le ^{64}Cu (demi-vie 12,7 h) a pu être mesuré au LBA, ce n'est pas toujours le cas pour le ^{61}Cu (3,4 h) quand les échantillons n'ont pas été ramenés suffisamment tôt au LPSC.

Dans ces tableaux, nous faisons figurer les temps et intensités moyennes d'irradiation, les raies principales des produits de réaction, ^{61}Cu et ^{64}Cu et leur demi-vie. Le comptage sur ces raies à la fin de l'irradiation, est calculé en extrapolant à la fin de l'irradiation les comptages successifs en fonction du temps par une exponentielle. L'intensité de ces raies et l'efficacité du détecteur à cette énergie permettent de calculer l'activité en fin d'irradiation. Les raies à 656, 908, 1185 keV du ^{61}Cu donnent des résultats semblables. Ce n'est pas le cas à 1099 keV pour une raison non expliquée.

On peut calculer l'activité en fin des 6 mois d'irradiation dans les conditions de référence : 100 mA, 8 heures par jour et 5 jours sur 7. Pour ^{61}Cu et ^{64}Cu , l'activité maximum est quasiment atteinte après 3 journées de huit heures chacune.

En supposant que ^{61}Cu et ^{64}Cu sont exclusivement produits par réactions (p,n) sur ^{61}Ni et ^{64}Ni , on calcule les taux de production sur ces deux isotopes en tenant compte de leur abondance dans le nickel naturel.

Echantillon	Temps irrad (mn)	I irrad (μA)	Raie (keV)	Isotope	T _{1/2} (mn)	Comptage 15 mn fin irrad	Intensité raie (%)	Efficacité (%)	Bq fin irrad	Activité @ 6 mois/ 100mA p (Bq)	Abondance isotopique (%)	Rendement
Ni Goodfellow mai												
Orsay	876	0,779	656	⁶¹ Cu	200	260000	10,77	4,5	59608	6,6E+09	1,1	1,2E-06
Orsay	876	0,779	908	⁶¹ Cu	200	17312	1,1	3,6	48575	5,3E+09	1,1	9,5E-07
Orsay	876	0,779	1345	⁶⁴ Cu	762	5546	0,47	2,73	48026	5,3E+09	0,91	2,0E-06
Ni 99.98 % juillet												
LBA	670	0,22	1345	⁶⁴ Cu	762		0,47		12380	5,9E+09	0,91	2,2E-06
Ni 99 % Juillet												
LBA	1030	0,22	1345	⁶⁴ Cu	762		0,47		15000	5,3E+09	0,91	2,0E-06
Ni électro Juillet												
LBA	710	0,22	1345	⁶⁴ Cu	762		0,47		11710	5,3E+09	0,91	2,0E-06

Tableau 2 : Irradiation de nickel en mai et juillet.

Echantillon	Temps irradiation (mn)	I irradiation (uA)	Raie (keV)	Isotope	T _{1/2} (mn)	Comptage 10 mn fin irradiation	Intensité raie (%)	Efficacité %	Bq fin irradiation	Activité @ 6 mois/ 100mA p (Bq)	Abondance%	Rendement
Ni Euramet A Octobre												
Orsay	1365	0,155	656	⁶¹ Cu	200	39850	10,77	4,50	13704	7,28E+09	1,10	1,30E-06
Orsay	1365	0,155	908	⁶¹ Cu	200	3089	1,10	3,60	13001	6,91E+09	1,10	1,23E-06
Orsay	1365	0,155	1099	⁶¹ Cu	200	1257	0,24	3,20	27279	1,45E+10	1,10	2,58E-06
Orsay	1365	0,155	1185	⁶¹ Cu	200	9095	3,75	3,00	13474	7,16E+09	1,10	1,28E-06
Orsay	1365	0,155	1345	⁶⁴ Cu	762	1049	0,47	2,73	13626	5,87E+09	0,91	2,17E-06
LBA	1365	0,155	1345	⁶⁴ Cu	762		0,47		9140	3,94E+09	0,91	1,46E-06
Ni Euramet B Octobre												
Orsay	1250	0,1736	656	⁶¹ Cu	200	37217	10,77	4,50	12799	6,10E+09	1,10	1,09E-06
Orsay	1250	0,1736	908	⁶¹ Cu	200	3941	1,10	3,60	16587	7,90E+09	1,10	1,41E-06
Orsay	1250	0,1736	1099	⁶¹ Cu	200	1431	0,24	3,20	31055	1,48E+10	1,10	2,64E-06
Orsay	1250	0,1736	1185	⁶¹ Cu	200	8790	3,75	3,00	13022	6,20E+09	1,10	1,11E-06
Orsay	1250	0,1736	1345	⁶⁴ Cu	762	995	0,47	2,73	12924	5,21E+09	0,91	1,93E-06
LBA	1250	0,1736	1345	⁶⁴ Cu	762		0,47		10020	4,04E+09	0,91	1,49E-06

Tableau 3 : Irradiation de nickel industriel en octobre.

Echantillon	Temps irrad mn	I irrad uA	Raie keV	Isotope	T _{1/2} (mn)	Comptage 60 mn fin irrad	Intensité raie %	Efficacité %	Bq fin irrad	Activité @ 6 mois/ 100mA p (Bq)	Abondance isotopique%	Rendement
Ni 192 décembre												
Dét 1	166	1,446	656	⁶¹ Cu	200	578000	10,77	4,5	33128	4,3E+09	1,1	7,6E-07
LBA	166	1,446	908	⁶¹ Cu	200				26320	3,4E+09	1,1	6,1E-07
Dét1	166	1,446	1345	⁶⁴ Cu	762	6237	0,47	2,4	15359	3,6E+09	0,91	1,3E-06
LBA	166	1,446	1345	⁶⁴ Cu	762				15730	3,7E+09	0,91	1,4E-06
Ni 11 décembre												
Dét 2	171	1,403	656	⁶¹ Cu	200	454000	10,77	3,5	33456	4,4E+09	1,1	7,8E-07
LBA	171	1,403	656	⁶¹ Cu	200				27670	3,6E+09	1,1	6,4E-07
Dét 2	171	1,403	1345	⁶⁴ Cu	762	5007,8	0,47	1,94	15256	3,6E+09	0,91	1,3E-06
LBA	171	1,403	1345	⁶⁴ Cu	762				15210	3,6E+09	0,91	1,3E-06
Ni 41 décembre												
Dét 3	163	1,413	656	⁶¹ Cu	200	288820	10,77	2,7	27590	3,7E+09	1,1	6,6E-07
LBA	163	1,413	656	⁶¹ Cu	200				25250	3,4E+09	1,1	6,0E-07
Dét 3	163	1,413	1345	⁶⁴ Cu	762	2753	0,47	1,3	12516	3,1E+09	0,91	1,1E-06
LBA	163	1,413	1345	⁶⁴ Cu	762				15210	3,7E+09	0,91	1,4E-06

Tableau 4 : Irradiation de nickel industriel en décembre

Le tableau 5 récapitule les taux de production de ^{61}Cu et ^{64}Cu .
 Les valeurs pour ^{61}Cu vont de $6 \cdot 10^{-7}$ à $1,2 \cdot 10^{-6}$ pour une valeur supposée de $2,5 \cdot 10^{-7}$.
 Pour ^{64}Cu , les valeurs vont de $1,1 \cdot 10^{-6}$ à $2,3 \cdot 10^{-6}$ pour une valeur supposée de $1,1 \cdot 10^{-6}$.

Labo	Date	Echantillon	Spectro	^{61}Cu	^{64}Cu
Orléans	Décembre	192	LBA	6,0E-07	1,3E-06
		192	Labo	7,0E-07	1,3E-06
		111	LBA	6,4E-07	1,3E-06
		111	Labo	7,7E-07	1,3E-06
		41	LBA	6,0E-07	1,4E-06
		41	Labo	6,6E-07	1,1E-06
Orsay	Octobre	Euramet A	Labo	1,2E-06	2,3E-06
			LBA		1,5E-06
		Euramet B	Labo	1,1E-06	1,9E-06
			LBA		1,5E-06
Orsay	Juillet	99,98%	LBA		2,2E-06
		99%	LBA		2,0E-06
		Electro	LBA		2,0E-06
Orsay	Mai	Goodfellow	Labo	9,3E-07	2,0E-06

Tableau 5 : Récapitulatif des rendements.

B - Les impuretés du Nickel

Les tableaux 6 à 8 présentent les produits de périodes supérieures à quelques heures, relevés sur les spectres des échantillons analysés au LBA. Les activités au bout de 6 mois d'irradiation ont été calculées.

Echantillon	Temps irradi (mn)	I irradi (uA)	Isotope	$T_{1/2}$ (mn)	Bq fin irradi	Activité@ 6 mois/ 100mA p (Bq)
Goodfellow Mai						
	876	0,779	^{65}Zn	351216	43,61	3,2E+08
Ni 99.98 % Juillet						
	670	0,22	^7Be	76320	0,19	3,1E+06
	670	0,22	^{65}Zn	351216	0,02	6,1E+05
	670	0,22	^{67}Ga	4694	0,13	1,5E+05
Ni 99%Juillet						
	1030	0,22	^7Be	76320	30,00	3,2E+08
	1030	0,22	^{57}Co	391392	0,07	1,7E+06
	1030	0,22	^{65}Zn	351216	0,03	6,6E+05
	1030	0,22	^{67}Ga	4694	0,11	8,4E+04
Ni électro Juillet						
	710	0,22	^{65}Zn	351216	19,00	6,0E+08
	710	0,22	^{67}Ga	4694	153,00	2,3E+08

Tableau 6 : Activités dues aux impuretés des Nickel, irradiations de mai et juillet.

Echantillon	Temps irradi (mn)	I irradi (uA)	Isotope	T _{1/2} mn	Bq fin irradi	Activité@ 6 mois/ 100mA p (Bq)
Ni Euramet A Octobre						
	1365	0,155	⁷ Be	76320	0,34	3,9E+06
	1365	0,155	⁴⁸ V	22997	0,09	3,4E+05
	1365	0,155	⁵⁴ Mn	449280	0,01	3,5E+05
	1365	0,155	⁵⁷ Co	391392	0,13	3,1E+06
	1365	0,155	⁵⁸ Co	101923	0,02	2,8E+05
	1365	0,155	⁶⁵ Zn	351216	0,05	1,2E+06
	1365	0,155	⁶⁷ Ga	4694	0,19	1,6E+05
	1365	0,155	⁷⁷ Br	3420	0,18	1,1E+05
Ni Euramet B						
	1250	0,1736	⁷ Be	76320	0,37	4,1E+06
	1250	0,1736	⁴⁸ V	22997	0,10	3,7E+05
	1250	0,1736	⁵⁷ Co	391392	0,18	4,1E+06
	1250	0,1736	⁶⁵ Zn	351216		0,0E+00
	1250	0,1736	⁶⁷ Ga	4694	0,07	5,5E+04

Tableau 7 : Activités dues aux impuretés des Nickel, irradiations d'octobre.

Echantillon	Temps irradi (mn)	I irradi (uA)	Isotope	T _{1/2} (mn)	Bq fin irradi	Activité @ 6 mois/ 100mA p (Bq)
Ni 191 Décembre						
	166	1,446	⁷ Be	76320	0,07	7,0E+05
	166	1,446	⁴⁸ V	22997	0,027	8,9E+04
	166	1,446	⁵¹ Cr	39888	0,1	5,7E+05
	166	1,446	⁵⁴ Mn	449500	0,03	6,5E+05
	166	1,446	⁵⁷ Co	391392	0,06	1,3E+06
	166	1,446	⁵⁸ Co	101923	0,01	1,2E+05
	166	1,446	⁶⁵ Zn	351216	0,04	8,3E+05
Ni 11 Décembre						
	171	1,403	⁷ Be	76320	10,5	1,0E+08
	171	1,403	⁴⁸ V	22997	0,1	3,3E+05
	171	1,403	⁵⁷ Co	391392	0,08	1,7E+06
	171	1,403	⁶⁵ Zn	351216	0,62	1,3E+07
	171	1,403	⁶⁷ Ga	4694	0,23	1,6E+05
Ni 41 Décembre						
	163	1,413	⁴⁸ V	22997	0,077	2,6E+05
	163	1,413	⁵⁷ Co	391392	0,15	3,3E+06
	163	1,413	⁶⁵ Zn	351216	0,134	2,9E+06
	163	1,413	⁶⁷ Ga	4694	0,16	1,1E+05

Tableau 8 : Activités dues aux impuretés du Nickel industriel, irradiations de décembre.

Elément	Abondance isotope %	Analyses	Réaction avec p	Produit	Energie disponible à 3 MeV	T _{1/2}	Gammas principaux (keV)	Intensité(s) γ %	Gamma vu	Données disponibles	mbarn à 3 MeV
⁷ Li	100	?	n	⁷ Be	1350	53j	477	10	oui	rien	
¹⁰ B	20	?	alpha		4139	53j	477	10	oui	oui	0,04
⁴⁸ Ti	73,7	?	n	⁴⁸ V	-1795	16j	983/1312	100/97	oui	rien	
⁴⁷ Ti	7,5	?	gamma			16j	983/1312	100/97	oui	oui	ε
⁵¹ V	99,8	?	n	⁵¹ Cr	3257	27,7 j	320	10	oui	oui	0,03
⁵⁴ Cr	2,36	?	n	⁵⁴ Mn	840	303j	834	100	oui	oui	0,02
⁵⁷ Fe	2,1	oui	alpha		3239	303j	834	100	oui	rien	
⁵³ Cr	9,5	oui	gamma			303j	834	100	oui	rien	
⁵⁷ Fe	2,1	oui	n	⁵⁷ Co	1382	270 j	122	85	oui	oui	~ 12
⁶⁰ Ni	26	oui	alpha		2736	217j	122	82	oui	rien	
⁵⁶ Fe	91,8	oui	gamma			270 j	122	85	oui	oui	0,04
⁵⁸ Fe	0,3	oui	n	⁵⁸ Co	-89	71j	811	95	oui	oui	~ 1
⁶¹ Ni	1,13	Nickel	alpha		3489	71 j	811	95	oui	rien	
⁵⁷ Fe	2,1	oui	gamma			71j	811	95	oui	rien	
⁶¹ Ni	1,1	Nickel	n	⁶¹ Cu	-19	3,4 h	656/908	11/1,1	oui	oui	3
⁶⁴ Zn	48,6	oui	alpha		3844	3,4h	656/908	11/1,1	oui	rien	
⁶⁰ Ni	26	Nickel	gamma			3,4 h	656/908	11/1,1	oui	oui	0,02
⁶⁴ Ni	0,91	Nickel	n	⁶⁴ Cu	543	12,7h	1345	0,5	oui	oui	0,006
⁶³ Cu	69,1	oui	n	⁶³ Zn	-1149	38mn	669/962	8/6.5	non	rien	
⁶⁵ Cu	30,8	oui	n	⁶⁵ Zn	250	243j	1115	50	oui	oui	~ 10
⁶⁷ Zn	4,1	?	n	⁶⁷ Ga	1217	3,6 j	300	16,8	oui	rien	
⁷⁰ Ge	20,5	?	alpha		4182	3,6 j	300	16,8	oui	rien	
⁶⁶ Zn	28	?	gamma			3,6 j	300	16,8	oui	rien	

Tableau 9 : Isotopes recensés lors des irradiations du nickel à 3 MeV. Les réactions avec le Nickel sont en rouge et italique. Le tableau mentionne la présence ou non de données dans la base EXFOR.

Le tableau 9 présente les produits de réaction recensés avec leurs origines possibles, les impuretés mentionnées ou non par les fournisseurs de Nickel et la présence ou non de données, souvent contradictoires, dans la base EXFOR pour ces réactions. L'énergie disponible à 3 MeV pour les réactions (p,n) et (p, α) a été calculée à partir des défauts de masse.

La plupart des isotopes à période longue proviennent de réactions sur des métaux de transition, proches chimiquement du nickel, dont les points de fusion sont de l'ordre de 1500 °C, et dont la teneur annoncée par le fabricant est très variable.

Le cuivre

Le cuivre donne en particulier du ^{65}Zn dont l'activité en fin d'irradiation et la demi-vie (243 jours) sont pénalisantes. Les irradiations de cuivre pur ont montré que ^{65}Zn était le seul isotope produit avec le Cuivre naturel à 3 MeV (mais pas à 5 MeV). L'activité importante avec le Nickel déposé électrochimiquement sur du Cuivre nous a conduit à rejeter cette technique.

Le fer

La teneur en fer dans les échantillons n'est pas précisée pour tous les échantillons. Cependant, avec les analyses disponibles, pour ^{57}Co , l'activité en Bq/Cb est proportionnelle à la concentration en fer, ce qui semblerait exclure les réactions $^{60}\text{Ni}(p,\alpha)^{57}\text{Co}$. Pour ^{58}Co , les activités sont faibles, elles croissent avec la concentration en fer, mais ne permettent pas d'exclure une contribution mineure de la réaction $^{61}\text{Ni}(p,\alpha)^{58}\text{Co}$.

Le Bore

La présence de ^7Be est plus surprenante, il semble que cet isotope provienne de la réaction sur le Bore : $^{10}\text{B}_5(p, \alpha)^7\text{Be}_4$. Le point de fusion du Bore est 2073 °C, on peut penser qu'il ne disparaît pas lors de la métallurgie du Nickel qui fond à 1455 °C ; il ne fait pas partie des éléments recherchés ni *a fortiori* quantifiés par les métallurgistes.

VI. Analyses par activations neutrons

Robert Delmas (CEA Saclay) a analysé par activation neutrons l'échantillon Euramet A transmis par Berthier (IPNO). Deux prélèvements de la plaque ont été irradiés l'un une heure, l'autre 7 heures sur le réacteur Orphée. L'activité gamma est mesurée en fonction du temps, on en déduit la teneur en isotope considéré. La plupart des éléments de Na à U sont analysés, la radioactivité induite par le Nickel (^{65}Ni) empêche cependant la détermination de la teneur de certains éléments. Dans le tableau xx, les résultats des analyses par activation et celles du métallurgiste sont exprimées en $\mu\text{g/g}$ ainsi que les produits de réaction relevés au LBA avec leur provenance possible (Le Krypton n'est évidemment ni présent ni analysé et est mentionné pour mémoire).

Elément	Mn	Ti	Cr	Fe		Cu	Zn	Ge	Se	Kr
Irradiation n	1100	-	37.2	478		7.8	2.9	<2	ε	-
Métallurgie	1100	-	-	500		100	-	-	-	-
Produit		⁴⁸ V	⁵⁴ Mn	⁵⁷ Co	⁵⁸ Co	⁶⁵ Zn	⁶⁷ Ga	⁷⁷ Br		

Tableau 10 : Comparaison des analyses par activation et de la fiche produit de l'échantillon Euramet A (coulée Thyssen 121480). Les résultats sont en µg/g.

VII. Le choix du Nickel

Les premières irradiations ont montré que le Nickel était un matériau acceptable pour l'arrêt de faisceau à 3 MeV, moyennant des limitations d'accès de l'ordre du jour après irradiation, compte tenu de la demi vie de ⁶⁴Cu : 12.7 heures. Nous avons irradié d'abord du Nickel Goodfellow avant de passer à des variétés industrielles (201Ni) dont la concentration en impuretés, spécifiées ou non par le métallurgiste, est très variable et en tout cas peu prévisible avant l'achat. Compte tenu des sommes en jeu, 13000 €, nous avons pu conditionner l'achat des trois cylindres de Nickel à une analyse par irradiation préalable d'un échantillon prélevé sur chaque cylindre.

Nous avons pu finaliser l'achat des trois cylindres retenus (191, 11 et 41), correspondant aux cylindres de diamètre 190, 110 et 40 mm. La qualité du 191 et du 41 est bonne. Celle du 11 est moins satisfaisante, surtout pour ⁶⁵Zn, mais compte tenu de sa faible contribution, moins de 10 % de la surface interceptant le faisceau, nous l'avons accepté. Selon la méthode d'usinage (électroérosion et non tournage), il sera possible de n'utiliser que le 190 et le 41.

VIII. Les débits de dose à la fin de la période d'essais

L'accès de la casemate dans laquelle se trouve l'arrêt de faisceau est interdit pendant le fonctionnement de l'accélérateur. Les murs en béton de 2 mètres assurent la protection contre les neutrons rapides produits par les réactions p,n.

Les débits de dose dus à l'activité résiduelle seront calculés à l'issue de la période d'essais. Les simulations ont été faites par M. Magistris et S. Million de l'ILL pour la plupart des isotopes avec le logiciel MICROSHIELD. Ce logiciel calcule la somme des débits de dose sur chacun des gammas provenant de la désintégration, y compris les désintégrations β à 511 keV. Nous avons choisi une géométrie cylindrique simplifiée : activité surfacique uniforme à l'intérieur d'un cylindre de nickel L = 1500 mm, diamètre 80 mm, épaisseur 3 mm, entouré de 5 mm d'eau et de 3 mm de fer.

On en déduit les débits de dose à 1 m en $\mu\text{Sv/h}$ par Bq.

Pour les autres isotopes, dont la contribution est plus réduite, nous avons utilisé une formule approchée [réf. 4] :

$DD\gamma = 1.0 \cdot 10^{-12} \cdot E\gamma \cdot \text{branchement}$: $DD\gamma$ est le débit de dose par Bq pour un γ , en $\mu\text{Sv/h}$ par Bq, $E\gamma$ est l'énergie du gamma considéré en keV, le branchement est exprimé en %.

Puis nous avons additionné la contribution des principaux gammas.

Pour les activités des produits de réactions sur le Nickel, nous avons retenu les valeurs maximales pour ^{61}Cu et pour ^{64}Cu , au bout des 6 mois d'irradiation, 8 heures sur 24 et 5 jours par semaine à 100 mA protons.

Pour les activités des impuretés, nous avons pris 100 % de celles du ^{111}Ni , le rondin de plus gros diamètre et 10 % de celles du ^{91}Ni (10 % de la surface totale), de qualité inférieure.

Le tableau 10 donne les débits de dose à 1 m de l'axe de l'arrêt de faisceau, blindé et non blindé, par Becquerel pour les isotopes les plus importants ainsi que les activités retenues en fin d'irradiation.

Les calculs ont été faits avec un blindage formé de 2 cm de plomb entouré de 5 mm de fer pour atténuer les X de 75 à 80 keV produits dans le plomb. Dans le calcul simplifié, nous avons supposé que le blindage divisait par 10 le débit de dose.

Isotope	^{61}Cu	^{64}Cu	^{65}Zn	^7Be	^{57}Co	^{67}Ga
Méthode de calcul	Microshield	Microshield	Microshield	Microshield	Simplifié	Simplifié
Débit de dose en $\mu\text{G/h/Bq}$ non blindé	9,0E-08	2,4E-08	6,0E-08	6,0E-09	1,2E-08	1,3E-08
Débit de dose en $\mu\text{G/h/Bq}$ avec blindage	2,4E-09	3,8E-08	9,4E-09	4,0E-11	1,2E-09	1,3E-09
Activité retenue (Bq)	1,0E+10	6,0E+09	1,3E+06	1,0E+07	1,3E+06	1,3E+04

Tableau 11: Débits de dose par Bq à 1 m de l'arrêt faisceau pour les principaux isotopes relevés.

Les débits de dose en fonction du temps, après l'irradiation ont été calculés pour l'arrêt de faisceau blindé et non blindé (Figures 3 et 4). Pour mémoire, la limite réglementaire annuelle d'exposition pour le public est de 1 mSv soit pour une durée annuelle de travail de 1600 h, 0.6 $\mu\text{Sv/h}$.

L'accès à la salle est possible dès le lendemain.

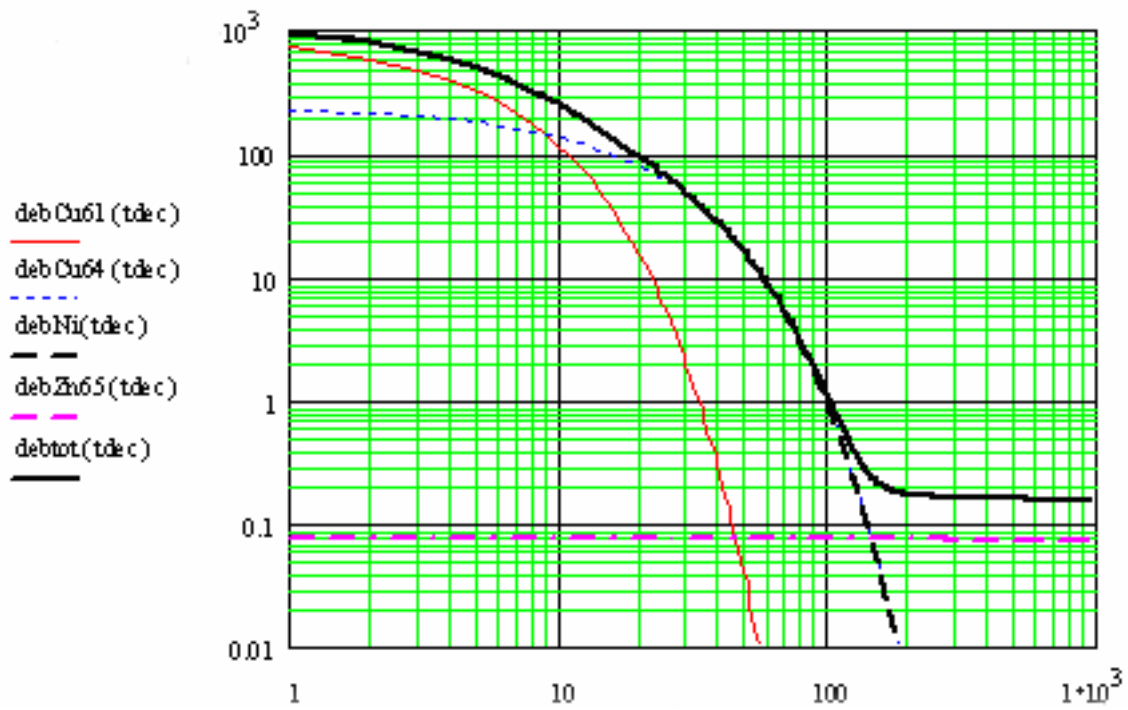


Figure 3: Débits de dose total et contributions des principaux radioéléments, à 1 m de l'arrêt faisceau non blindé en $\mu\text{Sv/h}$ en fonction du temps en heures.

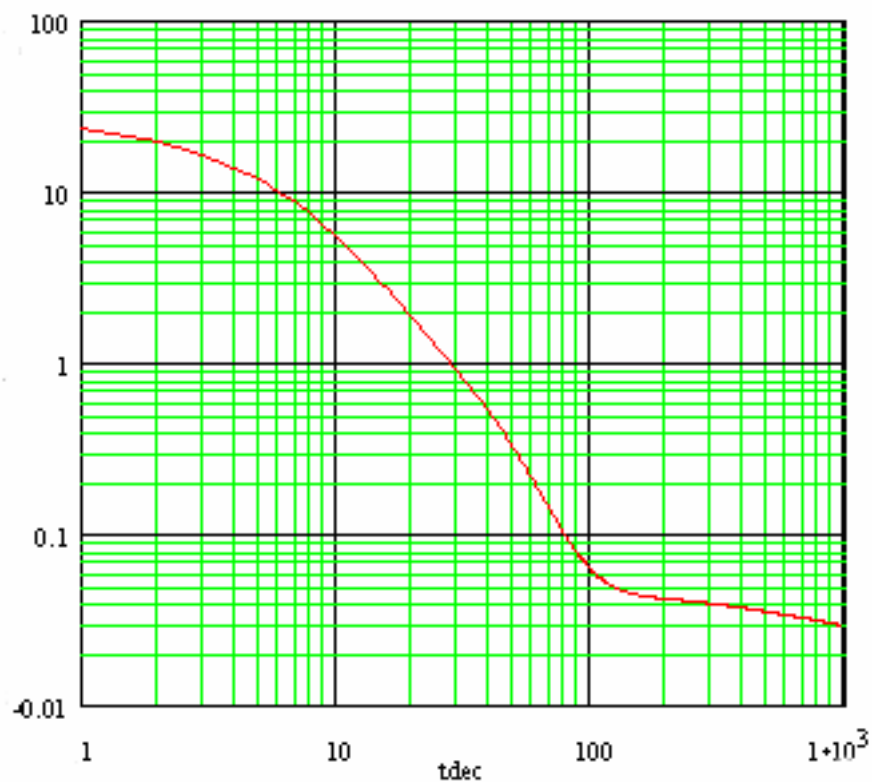


Figure 4: Débit de dose total, à 1 m de l'arrêt faisceau avec blindage en $\mu\text{Sv/h}$ en fonction du temps en heures.

IX. Activités et débits de dose en fonctionnement continu

Comme dit plus haut, les conditions nominales sont celles d'un fonctionnement 8 heures par jour, 5 jours sur 7 pendant 6 mois.

On peut en déduire les activités pour 30 mA et 100 mA en continu pendant 6 mois par rapport aux conditions nominales. Pour ^{61}Cu (3.4 h), l'activité est proche de la saturation et quasi proportionnelle au courant, pour ^{64}Cu (12.7 h), le fonctionnement en continu entraîne une activité à saturation voisine du double du fonctionnement aux heures ouvrables (tableau 11). Pour les impuretés à période longue, les activités sont proportionnelles aux courants moyens. Pour les débits de dose, à 100 mA continus, il suffit d'attendre 12 heures de plus pour retrouver les mêmes conditions d'accès (pour ^{64}Cu). A plus long terme, le débit de dose reste en dessous de la limite réglementaire.

Conditions	^{61}Cu	^{64}Cu	Impuretés
100 mA ,8h/24, 5j/7	$1*10^{10}$	$6*10^9$	$1.5*10^7$
30 mA continus	$0.4*10^{10}$	$4*10^9$	$1.9*10^7$
100 mA continus	$1.22*10^{10}$	$1.3*10^{10}$	$6.3*10^7$

Tableau 12 : Activités à l'arrêt après 6 mois, en Bq, pour différents modes de fonctionnement.

X. Nickel à 3 MeV et Cuivre à 3 et 5 MeV

A - Nickel à 5 MeV.

A 5 MeV, l'énergie disponible pour la réaction $^{61}\text{Ni}(p,n)^{61}\text{Cu}$ devient proche de 2 MeV (tableau 13), le taux de production augmente sensiblement et passe à $4*10^{-6}$ alors que pour ^{64}Cu , il n'y a pas de changement notable.

B - Cuivre à 3 et 5 MeV

A 3 MeV, la réaction $^{63}\text{Cu}(p,n)^{63}\text{Zn}$ est en dessous du seuil (tableau 1), à 5 MeV, près de 900 keV sont disponibles, ce qu'on retrouve sur le tableau 14. Les activités en ^{65}Zn sont importantes, ce qui conduirait à un débit de dose de l'ordre de 10 $\mu\text{Sv/h}$ à 1 mètre pour du cuivre massif avec blindage.

Echantillon	Temps irradi (mn)	I irradi (uA)	Raie (keV)	Isotope	T _{1/2} (mn)	Comptage 15 mn fin irradi	Intensité raie %	Efficacité %	Bq fin irradi	6 mois/ 100mA p (3,7E+5 Cb)	Abondance %	Rendement
Ni Goodfellow mai												
Orsay	876	0,779	656	⁶¹ Cu	200	1000000	10,77	4,50	229261	2,52E+10	1,10	4,50E-06
Orsay	876	0,779	908	⁶¹ Cu	200	78000	1,10	3,60	218855	2,41E+10	1,10	4,29E-06
Orsay	876	0,779	1345	⁶⁴ Cu	762	30000	0,47	2,73	259787	2,88E+10	0,91	1,07E-05

Tableau 13 : Irradiation du Nickel à 5 MeV.

Echantillon	Temps irradi mn	I irradi uA	Raie keV	Isotope produit	T _{1/2} (mn)	Comptage 10 mn fin irradi	Intensité raie %	Efficacité %	Bq fin irradi	Activité @6 mois/ 100mA p (Bq)	Abondance %	Rendement
Cu 3 MeV												
	401	0,839	669	⁶³ Zn	38	0	8,00	4,40	0	0,00E+00	70,00	0,00E+00
	401	0,839	962	⁶³ Zn	38	0	6,50	3,50	0	0,00E+00	70,00	0,00E+00
	401	0,839	1115	⁶⁵ Zn	351216	43000	50,60	3,20	4426	6,52E+10	30,00	3,56E-06
Cu 5 MeV												
	60,33	0,807	669	⁶³ Zn	38	1050000	8,00	4,40	497159	9,30E+10	70,00	2,12E-07
	60,33	0,807	962	⁶³ Zn	38	593000	6,50	3,50	289621	5,42E+10	70,00	1,24E-07
	60,33	0,807	1115	⁶⁵ Zn	351216	15300	50,60	3,20	1575	1,60E+11	30,00	8,74E-06

Tableau 14 : Irradiation de Cuivre à 3 et 5 MeV

XI. Production de neutrons

En prenant comme source essentielle les réactions p,n , sur ^{61}Ni et ^{64}Ni , la production de neutrons rapides est de $2 \cdot 10^{10}/\text{s}$ à 100 mA. Leur énergie maximale est 3 MeV et leur distribution est relativement isotrope. L'épaisseur de béton, $d_{(1/10)}$ qui atténue d'un facteur 10 un flux de neutrons de 3 MeV est 20 cm [Réf 5]. Pour une incidence normale, les deux mètres de la casemate introduiront une atténuation minimale de 10^{10} .

Une faible partie de ces neutrons sera thermalisée par les 3 mm de la chemise d'eau autour de l'arrêt de faisceau. Les sections efficaces de capture de ces neutrons sur les matériaux voisins (Ni, Fe, Cr) sont faibles, quelques mbarn. Pour le Nickel, les produits sont stables sauf ^{59}Ni qui ne produit pas de γ , de même pour le fer qui produit ^{55}Fe , également sans γ . Seul le chrome de l'acier inoxydable donne ^{51}Cr de période 27 jours. Le cuivre produit ^{64}Cu qui est déjà produit par réactions p,n sur le Nickel

XII. Conclusion

La série d'expériences sur le nickel a permis de vérifier que ce métal était un bon candidat pour l'arrêt des protons à 3 MeV en raison d'une activité résiduelle acceptable et d'une décroissance de l'activité avec une demi-vie de 12,7 heures. Les impuretés des cylindres que nous avons achetés n'introduisent qu'une activité résiduelle réduite.

Références

- [1] : T.P. Intrator et al. - NIM **188** (1981) pp 347-352.
- [2] : H. Vernon and al., "Status update on the low-energy demonstration accelerator (LEDA)", APT Technical Project Office, Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, New Mexico, 87545.
- [3] : A. Benabed, R. Brissot – Le Laboratoire de Mesure des Faibles Activités – Rapport interne RI ISN 96.12.
- [4] : J. Shapiro – Radiation Protection – Ed. Harvard University Press, p. 89 (2002).
- [5] : J. Kantele - Handbook of Nuclear Spectroscopy, p 165, Academic Press (1994).